

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
21. Februar 2002 (21.02.2002)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 02/15307 A2

(51) Internationale Patentklassifikation⁷:

H01M 8/00

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): PREIDEL, Walter
[DE/DE]; Pirkheimerweg 5, 91058 Erlangen (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/DE01/02981

(22) Internationales Anmeldedatum:

3. August 2001 (03.08.2001)

(74) Gemeinsamer Vertreter: SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT; Postfach 22 16 34, 80506 München (DE).

(25) Einreichungssprache:

Deutsch

(81) Bestimmungsstaaten (national): CA, CN, JP, US.

(26) Veröffentlichungssprache:

Deutsch

(84) Bestimmungsstaaten (regional): europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).

(30) Angaben zur Priorität:

100 40 088.4 16. August 2000 (16.08.2000) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE];
Wittelsbacherplatz 2, 80333 München (DE).

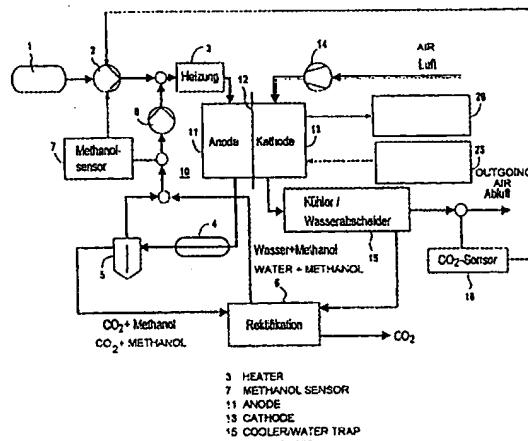
Veröffentlicht:

— ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: METHOD FOR OPERATING A FUEL CELL SYSTEM AND A CORRESPONDING FUEL CELL INSTALLATION

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUM BETRIEB EINES BRENNSTOFFZELLENSYSTEMS UND ZUGEHÖRIGE BRENNSTOFFZELLENANLAGE



(57) Abstract: In fuel cells (DMFC) methanol, serving as the fuel, is supplied to the system, whereby anode fluid including waste gases, such as carbon dioxide or the like, have to be led away after combustion. According to the invention, the carbon dioxide, which develops on the anode, is separated when hot from the anode fluid after leaving the anode of the fuel cell stack. The vaporous fuel separated together with the carbon dioxide is depleted in the reverse flow using cold water, that is recovered in the condenser of the cathode waste gas, and the warmer water of the anode fluid is admixed. In the corresponding installation, a cooler (4) with a CO₂ trap (5) arranged downstream is provided at least for the anode fluid, and a unit (6) for carrying out rectification is provided with which fuel contained there is separated and returned into the fuel circuit.

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

WO 02/15307 A2

BEST AVAILABLE COPY



Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

(57) Zusammenfassung: Bei Brennstoffzellen (DMFC) wird Methanol der Brennstoff dem System zugeführt, wobei nach der Verbrennung Anodenflüssigkeit einschliesslich von Abgasen, wie Kohlendioxid od. dgl., weggeführt werden muss. Gemäss der Erfindung wird das Kohlendioxid, das an der Anode entsteht, nach Austritt aus der Anode des Brennstoffzellenstapels heiss von der Anodenflüssigkeit abgetrennt. Dabei wird der mit dem Kohlendioxid zusammen abgetrennte dampfförmige Brennstoff im Gegenstrom mit kaltem Wasser, das im Kondensator des Kathodenabgases gewonnen wird, abgereichert und das wärmere Wasser der Anodenflüssigkeit beigemischt. Bei der zugehörigen Anlage ist wenigstens für die Anodenflüssigkeit ein Kühler (4) mit nachfolgendem CO₂-Abscheider (5) vorgesehen und ist eine Einheit (6) zur Rektifikation vorhanden, mit der dort enthaltener Brennstoff abgetrennt und in den Brennstoffkreislauf zurückgeführt wird.

Beschreibung

Verfahren zum Betrieb eines Brennstoffzellensystems und zugehörige Brennstoffzellenanlage

5

Die Erfindung bezieht sich auf ein Verfahren zum Betrieb einer Anlage mit wenigstens einer Brennstoffzelle, bei der aus einzelnen Brennstoffzelleneinheiten ein oder mehrere Brennstoffzellenstapel gebildet werden, dem ein Brennstoff zugeführt wird und nach Verbrennung in den Brennstoffzellen- einheiten als Anodenflüssigkeit einschließlich von Abgasen, wie Kohlendioxid od. dgl., weggeführt wird. Daneben bezieht sich die Erfindung auch auf eine Brennstoffzellenanlage, die einen Brennstoffzellenstapel mit wenigstens einer Brennstoff- zelle mit durch eine Membran getrennten Anodenteil und Katho- denteil enthält. Bei der Erfindung ist der Brennstoff vor- zugsweise, aber nicht ausschließlich Methanol.

Brennstoffzellen werden mit flüssigen oder gasförmigen Brenn- stoffen betrieben. Sofern die Brennstoffzelle mit Wasserstoff arbeitet, ist eine Wasserstoff-Infrastruktur oder ein Refor- mer zur Erzeugung des gasförmigen Wasserstoffes aus dem flüs- sigen Brennstoff notwendig. Flüssige Brennstoffe sind z.B. Benzin oder Alkohol, wie Ethanol oder Methanol. Eine sog. DMFC („Direct Methanol Fuel Cell“) arbeitet direkt mit flüs- sigem Methanol als Brennstoff.

Das System einer Direkt-Methanolbrennstoffzelle (DMFC) ist z.B. in der US 5 599 638 A beschrieben. Neben den hohen Nach- teilen einer für technisch anwendbare Systeme der DMFC zu geringen Leistungsdichte und den zu hohen Permeabilitäten der kommerziell erhältlichen Membranen für Methanol und Wasser, hat die DMFC eine Reihe von systemimmanenten Eigenheiten, die bei dem Betriebskonzept des Systems entsprechend berücksich- tigt werden müssen. Diese Eigenheiten sind:
a) Da die zur Zeit kommerziell erhältlichen, protonenleiten- den Membranen flüssiges Wasser für den Leitungsmechanismus

benötigen, müssen für die Anodenflüssigkeit Druck und Temperatur so gewählt werden, dass der Siedepunkt der Flüssigkeit nicht überschritten wird. Weil der Druckunterschied zwischen Anode und Kathode nicht die mechanische Belastbarkeit der Membrane überschreiten darf und durch einen Druckgradienten sogar noch zusätzlich Wasser und Methanol von der Anode zur Kathode transportiert wird, sollte der Druckunterschied zwischen Anode und Kathode möglichst gering sein. Für den Luftbetrieb muss neben dem notwendigen Sauerstoff auch Stickstoff komprimiert und der Kathode zugeführt werden, damit wird je nach Druckniveau Energie verschwendet. Auch ein nachgeschalteter Expander kann diesen Verlust nur mindern, aber nicht vermeiden.

10 b) Auf der Anodenseite entsteht durch die Elektrodenreaktion Kohlendioxid, das als Gas von der Anodenflüssigkeit abgetrennt werden muss und als Abgas das System verlässt. Auf diesem Weg wird aber zusammen mit dem Kohlendioxid auch der Brennstoff Methanol als Dampf das System verlassen. Hier besteht also ein Leck, das einerseits zu einer Minderung der Brennstoffausnutzung führt und andererseits als Emission an die Umgebung abgegeben wird.

15 c) Für das Aufrechterhalten des Anodenkreislaufs wird zusätzlich Wasser benötigt, da die Anodenreaktion Wasser verbraucht. Es muss also aus dem Kathodenabgas so viel Wasser durch Kondensation zurückgewonnen werden, dass das System nicht an Wasser verarmt und somit zusätzlich zum Brennstoff Wasser nachgetankt wird. Das Betriebskonzept muss also so ausgelegt sein, dass das Wasser in ausreichendem Maß aus dem Kathodenabgas zurückgewonnen wird.

20 30 In der WO 99/44250 A1 wird zu Punkt (a) die Temperatur des Systems über die Laufleistung der Pumpe für die Anodenflüssigkeit geregelt und der Druck stellt sich damit über die Temperatur und die jeweilige Leistung von Kompressor/Expander ein. Da bei dem dort beschriebenen System die Brennstoffkonzentration konstant gehalten wird, sind die Brennstoffverluste im Teillastbetrieb zwangsläufig sehr hoch. Der

Wirkungsgradvorteil der DMFC im Teillastbereich gegenüber einem Reformer/H₂-PEM System kommt auf diese Weise nicht zum Tragen. Das an der Anode entstandene Kohlendioxid gemäß Punkt (b) wird dem Kathodenabgas beigemischt und damit das Methanol 5 verdünnt, um den Auflagen hinsichtlich Emission zu genügen. Um das Wasser aus dem Kathodenabgas zurückzugewinnen, wird nach dem Expander noch ein Kühler und Wasserabscheider nachgeschaltet, damit das Wasser möglichst weitgehend auskondensiert.

10

Davon ausgehend ist es Aufgabe der Erfindung, das Betriebskonzept für eine flüssig betriebene Direkt-Methanol-Brennstoffzelle zur verbessern. Es soll hierfür ein Verfahren angegeben werden und eine diesbezügliche Anlage geschaffen 15 werden.

Die Aufgabe ist erfindungsgemäß bei einem Verfahren der eingangs genannten Art durch die im Patentanspruch 1 angegebenen Verfahrensschritte gelöst. Die zugehörige Anlage ist Gegenstand des Patentanspruches 11. Weiterbildungen des Betriebsverfahrens einerseits und der Anlage andererseits sind in den jeweils abhängigen Ansprüchen angegeben.

Mit der Erfindung wird ein verbessertes Betriebskonzept für 25 eine Brennstoffzelle realisiert. In der spezifischen Anwendung bei einer Direkt-Methanol-Brennstoffzelle (DMFC) mit flüssigem Methanol als Brennstoff sind dabei folgende Punkte wesentlich gekennzeichnet:

- Das Kohlendioxid, das an der Anode entsteht, wird direkt 30 nach Austritt aus der Anode des Stacks heiß von der Anodenflüssigkeit abgetrennt. In dieser Situation ist die Trennung am effektivsten, weil die Löslichkeit des Kohlendioxids aufgrund der hohen Temperatur am geringsten ist.
- Der mit dem Kohlendioxid zusammen abgetrennte Methanoldampf 35 wird mit dem kalten Wasser, das in dem Kondensator des Kathodenabgases gewonnen wird, im Gegenstrom von Methanol abgereichert.

- Dieses nun wärmere Wasser wird wieder der Anodenflüssigkeit vor dem Methanolsensor beigemischt.
- Die Methanolkonzentration wird nicht konstant gehalten, sondern je nach Strom mittels Pumpe dem Anodenkreislauf beigemischt, dadurch erreicht man auch im Teillastbereich einen hohen Wirkungsgrad.
- Die Methanolverluste über die Membrane, verursacht durch Diffusion und Elektroosmose, werden durch die Messung der Kohlendioxidkonzentration im Kathodenabgas erfasst und bei der Methanoldosierung berücksichtigt.
- Das Volumen der Anodenflüssigkeit wird so gering wie möglich gehalten, damit die Regelung so schnell wie möglich ist. Damit werden die Verluste vermindert, der Wirkungsgrad insbesondere bei Lastwechsel erhöht, die Dynamik des Systems verbessert und auch das Aufheizen auf Betriebstemperatur beschleunigt.
- Die Anodenflüssigkeit wird so rasch wie möglichst umgepumpt, damit die Methanolversorgung auch bei geringer Konzentration ausreichend ist. Das Kohlendioxid wird dadurch schnell von der Katalysatorschicht wegtransportiert.
- Eine weitere Kühlung des Stacks ist nicht erforderlich, da bei steigender Temperatur die Wärme durch die Verdampfungswärme des Wassers, das von der Anode flüssig zur Kathode permeiert, an der Kathode verdampft und damit die Wärme aus dem Stack heraustransportiert wird. Damit kann der Kühler aus einem Kondensator bestehen, in dem die Kondensationswärme an Kühlwasser oder an einen Luftstrom abgegeben wird.

30 Insbesondere in letzteren Punkten ist ein bedeutender Systemvorteil der Direkt-Methanol-Brennstoffzelle zu sehen, denn mit diesem Prinzip lässt sich durch die Wahl des Systemdrucks und des Luftüberschusses die maximale Temperatur des Stacks vorwählen und damit das Brennstoffzellensystem steuern.

35 Weitere Einzelheiten und Vorteile der Erfindung ergeben sich aus der nachfolgenden Figurenbeschreibung von Ausführungs-

beispielen an Hand der Zeichnung in Verbindung mit den Patentansprüchen. Es zeigen

Figur 1 das Betriebskonzept einer DMFC-Brennstoffzelle und
5 Figur 2 eine Ergänzung von Figur 1 auf der Kathodenseite
unter Verwendung eines Expanders.

In der Figur 1 ist die Übersicht über eine Methanol-Brennstoffzellen-Einheit 10 mit den zugehörigen Betriebseinheiten
10 gegeben. Dabei sind im Wesentlichen Flüssigkeit/Gaskreisläufe von Bedeutung, aber auch die elektrische Ansteuerung ist von Wichtigkeit.

In der Figur 1 ist ein Methanoltank 1 mit einer nachfolgenden
15 Dosierpumpe 2 und einer Heizung 3 dargestellt, über die das flüssige Methanol als Betriebsstoff zur Brennstoffzellen-Einheit 10 gelangt. Die Brennstoffzellen-Einheit 10 ist in der Modifikation als Direkt-Methanol-Brennstoffzelle (Direct Methanol Fuel Cell $\hat{=}$ DMFC) realisiert und im Wesentlichen
20 durch eine Anode 11, eine Membran 12 und eine Kathode 13 charakterisiert. Dem Anodenteil ist ein Kühler 4, ein CO_2 -Abscheider 5, eine Einheit 6 zur Rektifikation und ein Methanolsensor 8 zugeordnet.

25 Auf der Kathodenseite ist ein Verdichter 14 für Luft, ein Kühler bzw. Wasserabscheider 15 für die Kathodenflüssigkeit und ein CO_2 -Sensor 16 vorhanden. Weiterhin sind für den Betrieb der Anlage eine Einheit 25 zur Steuerung/Regelung der Brennstoffzellen-Einheit 10 sowie gegebenenfalls ein elektrischer Wechselrichter 26 vorhanden.

Mit dem so beschriebenen System ist folgender Betrieb möglich, der wesentliche Verbesserungen gegenüber dem Stand der Technik mit sich bringt: Das an der Anode 11 entstehende
35 Kohlendioxid wird direkt nach Austritt aus der Anode 11 des Brennstoffzellen-Stapels heiß von der Anodenflüssigkeit abgetrennt. Hier ist die Trennung am effektivsten, weil die

Löslichkeit des Kohlendioxids auf Grund der hier vorliegenden hohen Temperatur am geringsten ist. Der mit dem Kohlendioxid zusammen abgetrennte Methanoldampf wird mit dem kalten Wasser, das im Kühler 16 bzw. Kondensator des Kathodenabgases 5 gewonnen wird, im Gegenstrom von Methanol abgereichert, was in der Einheit 6 Rektifikation erfolgt. Das damit entstandene wärme Wasser wird wieder mit der Anodenflüssigkeit beige- mischt und zwar vor dem Methanolsensor 8. Die Methanolkonzen- tration wird nicht konstant gehalten, sondern je nach Strom 10 mittels der Umwälzpumpe 7 dem Anodenkreislauf beigemischt. Damit ergibt sich auch im Teillastbereich ein hoher Wirkungs- grad.

Bei dem beschriebenen System können Methanolverluste über die 15 Membranen 12 der Brennstoffzellen-Einheit 10, die durch Diffu- sion und Elektroosmose verursacht werden, durch die Messung der Kohlendioxidkonzentration im Kathodenabgas mittels des Sensors 16 erfasst werden, was bei der Methanoldosierung im Anodenkreislauf berücksichtigt wird. Das Volumen der Anoden- 20 flüssigkeit kann dabei so gering wie möglich gehalten werden, so dass eine schnelle Regelung geschaffen ist. Somit sind Verluste minimiert und der Wirkungsgrad, insbesondere bei Lastwechsel, erhöht. Die Dynamik des gesamten Systems ist im Vergleich zu bekannten Anlagen verbessert und auch das Auf- 25 heizen auf Betriebstemperatur wird beschleunigt.

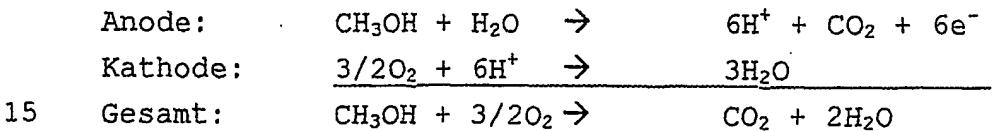
Bei dem in Figur 1 dargestellten System kann die Anoden- flüssigkeit schnell umgepumpt werden, wodurch die Methanol- versorgung auch bei geringer Konzentration ausreichend ist. 30 Das störende Kohlendioxid wird dadurch schnell von der Kata- lysatorschicht wegtransportiert.

Bei dem anhand Figur 1 beschriebenen System ist eine zusätz- liche Kühlung des Brennstoffzellenstapels nicht erforderlich, 35 da bei steigender Temperatur das Wasser, das von der Anode zur Kathode permeiert, an der Kathode verdampft und damit die Wärme aus dem Brennstoffzellenstapel heraustransportiert

wird. Somit kann der Kühler 15 aus einem Kondensator bestehen, indem die Kondensationswärme an Kühlwasser oder an einen Luftstrom abgegeben wird.

5 Durch die definierte Temperatur des Kondensierens des Wasserdampfs im Kathodenabgas wird im Zusammenhang mit dem Luftüberschuss an der Kathodenseite und dem Systemdruck auf der Kathode die Menge des Wassers definiert, das für den Betrieb des Systems wiedergewonnen werden muss. Aus den Reaktionsgleichungen für die Anodenreaktion, Kathodenreaktion und der sich daraus ergebenden Gesamtreaktion folgt:

10



Von den drei Wassermolekülen, die pro Molekül Methanol an der Kathode entstehen, muss ein Wassermolekül im Kathodenabgas auskondensiert und zurück in die Anodenflüssigkeit gegeben werden. Das zusätzliche Wasser, das über die drei Wassermoleküle hinaus zu der Kathode transportiert wird, wird durch die Vorgabe des Taupunktes des Auskondensierens des einen Moleküls in der Luft auf der Kathodenseite ebenfalls auskondensiert, da deren Taupunkttemperatur höher liegt, da es zusätzliches Wasser ist und damit bei einem höheren Taupunkt auskondensiert. Aus der Dampfdruckkurve des Wassers lässt sich damit für eine gegebene Menge Luft, die der stöchiometrisch erforderlichen Menge entspricht, multipliziert mit der Zahl λ ($\lambda = 1 - 10$, vorzugsweise 1,5 bis 2,5) eine zugehörige Temperatur beziehungsweise ein damit verknüpfter Druck angeben, bei denen eines der drei Moleküle Wasser auskondensiert. Unter diesen Betriebsbedingungen wird die Wassermenge im Brennstoffzellensystem konstant gehalten.

20

25

30

35 In Figur 1 ist ein elektrischer Wechselrichter 26 vorhanden. Dieser Wechselrichter 26 ist optional, um gegebenenfalls die Gleichspannung in Wechselspannung umzusetzen.

In Figur 2 ist am Kathodenausgang hinter dem Kondensator/Kühler - Wasserabscheider ein additiver Expander 17 vorhanden, um Energie aus der Expansion zurückzugewinnen. Dabei 5 ist hinter dem Expander 17 ein weiterer Wasserabscheider 18 angeordnet, um das Wasser, das durch die weitere Abkühlung der Abluft im Expander 17 auskondensiert, wieder zurückzugewinnen. Der Taupunkt wird damit weiter herabgesetzt. Da dieses für den Wasserhaushalt nicht unbedingt notwendig ist, 10 kann daher der Kondensator/Kühler 15 vor dem Expander verkleinert werden.

In Figur 1 ist die Heizeinheit 3 für die Anodenflüssigkeit vorhanden, um die Anfahrzeit der Brennstoffzelle insbesondere 15 bei Temperaturen $\leq 10^\circ\text{C}$ zu verkürzen. Eine Heizung der Anodenflüssigkeit vor dem Eintritt in die Anode des Brennstoffzellenstapels ist aber nicht zwingend notwendig.

Da die Abluft durch die Beladung mit dem Wasserdampf einen 20 hohen Wärmeinhalt besitzt, ist es vorteilhaft, die Zuluft mittels der Abluft im Gegenstrom durch einen zusätzlichen Wärmetauscher auf Betriebstemperatur zu erwärmen. Auf diese Weise wird der Temperaturgradient im Stack vermindert, dadurch die Effektivität der Anlage vergrößert und die Abluft 25 etwas abgekühlt und damit kann der Abluftkondensator/Kühler etwas verkleinert werden.

Sofern die Anodenflüssigkeit mit möglichst hoher und konstanter Förderrate durch den Stack gepumpt wird, was anhand Figur 30 1 im Einzelnen ausgeführt wird, kann aus der elektrischen Leistung bzw. den elektrischen Strom der Pumpe die Methanolkonzentration der Flüssigkeit abgeschätzt werden, da die Viskosität des Methanol/Wassergemisches von dem Methanolgehalt abhängt. Weiterhin ist die Viskosität des Gemisches 35 von der Temperatur abhängig. Bei Temperaturen oberhalb von 80°C ist der Effekt allerdings sehr gering. Der elektrische Strom der Pumpe bei konstanter Drehzahl, d.h. bei konstanter

Förderung ist dann ein Maß für die Methanolkonzentration bei konstanter Temperatur.

Mit dem im Einzelnen beschriebenen Betriebsverfahren und der 5 zugehörigen Anlage kann eine beachtliche Verbesserung des Betriebes von Direkt-Methanol-Brennstoffzellen erreicht werden. Das neue Betriebskonzept hat sich in der Praxis bewährt.

10 Die vorstehend anhand einer mit Methanol betriebenen DMFC beschriebene Problemlösung lässt sich auch auf mit anderen Brennstoffen betriebene Brennstoffzellen übertragen.

Patentansprüche

1. Verfahren zum Betrieb eines Brennstoffzellen-Systems, bei dem aus einzelnen Brennstoffzelleneinheiten ein oder mehrere Brennstoffzellenstapel gebildet sind, dem ein Brennstoff zugeführt wird und nach Verbrennung in den Brennstoffzelleneinheiten als Anodenflüssigkeit einschließlich von Abgasen, wie Kohlendioxid od. dgl., weggeführt wird, mit folgenden Verfahrensschritten:
 - 10 - Das Kohlendioxid, das an der Anode entsteht, wird direkt nach Austritt aus der Anode des Brennstoffzellenstapels heiß von der Anodenflüssigkeit abgetrennt,
 - der mit dem Kohlendioxid zusammen abgetrennte dampfförmige Brennstoff wird im Gegenstrom mit kaltem Wasser, das in einem Kondensator für das Kathodenabgas gewonnen wird, von Brennstoff abgereichert, und
 - das angewärmte Wasser wird der Anodenflüssigkeit beigemischt.
- 20 2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Brennstoff Methanol ist, das einer Direkt-Methanol-Brennstoffzelle (DMFC) als Mischung mit Wasser zugeführt wird.
- 25 3. Verfahren nach Anspruch 2, bei dem ein Methanolsensor zur Messung des Methanolgehaltes im Anodenkreislauf verwendet wird, dadurch gekennzeichnet, dass die Beimischung des angewärmten Wassers vor der Messung des Methanolgehaltes erfolgt.
- 30 4. Verfahren nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, dass das Methanol in Abhängigkeit vom Arbeitsstrom der Anodenflüssigkeit im Anodenkreislauf beigemischt wird.
- 35 5. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, dass über die Membrane erfolgte zwangs-

läufige Methanolverluste, die durch Diffusion und/oder Elektroosmose verursacht werden, durch Messung der Kohlendioxidkonzentration im Kathodenabgas erfasst und bei der Methanoldosierung berücksichtigt werden.

5

6. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, dass das Volumen der Anodenflüssigkeit gering gehalten wird, um eine schnelle Regelung zu erreichen.

10 7. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, dass die Anodenflüssigkeit möglichst schnell umgepumpt wird, um eine hinreichende Methanolversorgung auch bei geringer Konzentration zu erreichen.

15 8. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, dass die Kühlung des Elektrodenstapels dadurch erfolgt, dass bei steigender Temperatur die Wärme durch die Verdampfungswärme des Wassers, das von der Anode in flüssiger Form zur Kathode permeiert, an der Kathode verdampft und die Wärme mittransportiert.

20 9. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass durch Vorgabe des Taupunktes zusätzlich Wasser auskondensiert wird.

25

10. Verfahren nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, dass die Gesamtwassermenge konstant gehalten wird.

30 11. Brennstoffzellen-Anlage für den Betrieb mit einem flüssigen Brennstoff, enthaltend einen Brennstoffzellenstapel mit wenigstens einer Brennstoffzelle (10) mit durch eine Membran (12) getrennten Anodenteil (11) und Kathodenteil (13), der ein Brennstoff-Tank (1) zur Zuführung des flüssigen Brennstoffes in der Mischung mit Wasser und einer Heizung (3) zugeordnet ist, dadurch gekennzeichnet, dass für die Anodenflüssigkeit ein Kühler (4) mit nachfolgen-

dem CO₂-Abscheider (5) vorgesehen ist und über eine Einheit (6) zur Rektifikation der Brennstoff abgetrennt und in den Brennstoffkreislauf zurückgeführt wird.

5 12. Brennstoffzellen-Anlage nach Anspruch 11, dadurch
gekennzeichnet, dass ein Sensor (8) für den
Brennstoff vorhanden ist.

10 13. Brennstoffzellen-Anlage nach Anspruch 11, dadurch
gekennzeichnet, dass eine Umwälzpumpe (7) zur
Rückführung des Brennstoffes vorhanden ist.

15 14. Brennstoffzellen-Anlage nach Anspruch 11, dadurch
gekennzeichnet, dass eine Heizung (3) für die
Anodenflüssigkeit vorhanden ist.

20 15. Brennstoffzellen-Anlage nach Anspruch 11, dadurch
gekennzeichnet, dass im Kathodenkreislauf ein
Kondensator/Kühler (15) zur Wasserausscheidung vorhanden ist.

25 16. Brennstoffzellen-Anlage nach Anspruch 11, dadurch
gekennzeichnet, dass im Kathodenkreislauf ein
Expander (17) zur Herabsetzung des Taupunktes der Abluft vor-
handen ist.

30 17. Brennstoffzellen-Anlage nach Anspruch 16, dadurch
gekennzeichnet, dass der Expander (17) zwi-
schen dem Kondensator/Kühler(15) und einem Wasserabscheider
(18) angeordnet ist.

35 18. Brennstoffzellen-Anlage nach Anspruch 11, dadurch
gekennzeichnet, dass im Kathodenkreislauf ein
CO₂-Sensor (16) vorhanden ist.

35 19. Brennstoffzellen-Anlage nach Anspruch 11, dadurch
gekennzeichnet, dass der Kathode (13) in der

Brennstoffzelle (10) ein Verdichter (14) für Luft zugeordnet ist.

20. Brennstoffzellen-Anlage nach einem der Ansprüche 1 bis
5 19, dadurch gekennzeichnet, dass dem Brennstoffzellenstapel eine Einheit (25) zur Steuerung und/oder Regelung zugeordnet ist.

21. Brennstoffzellen-Anlage nach einem der Ansprüche 11 bis
10 20, dadurch gekennzeichnet, dass dem Brennstoffzellenstapel ein elektrischer Wechselrichter (26) zugeordnet ist.

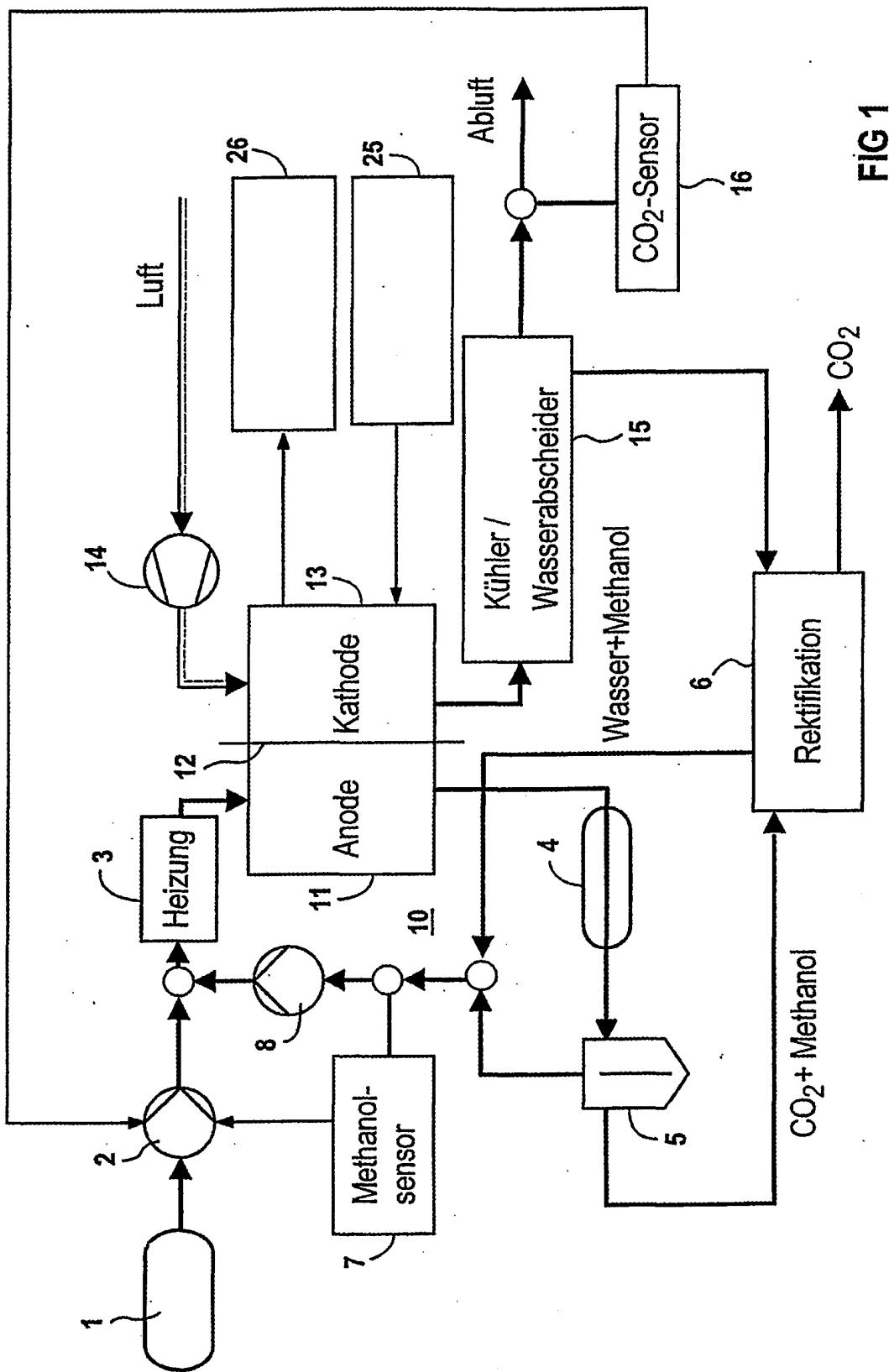


FIG 1

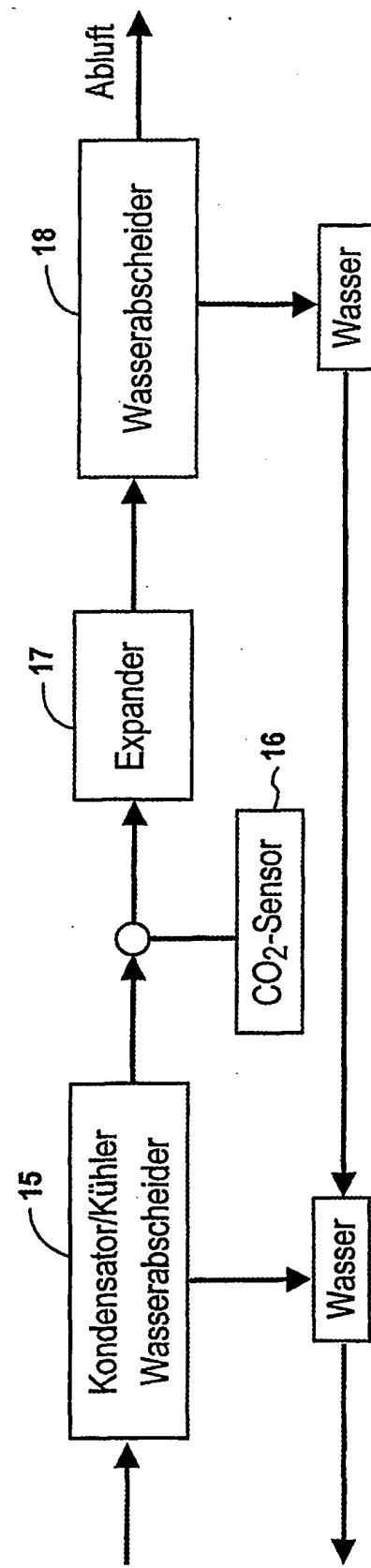


FIG 2

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.